

ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT AND ITS MANUFACTURING METHOD

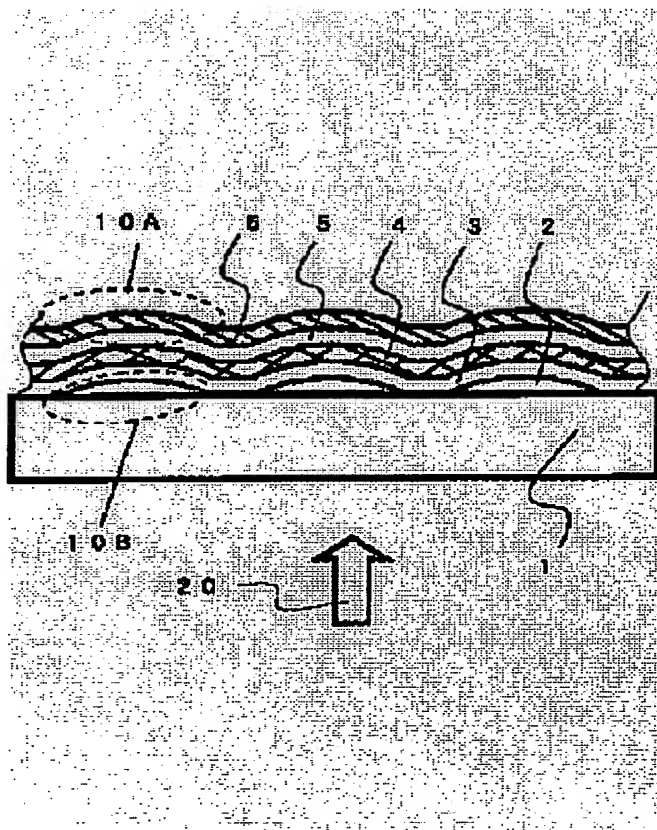
Patent number: JP2003249381
Publication date: 2003-09-05
Inventor: MASUSHIGE KUNIO
Applicant: ASAHI GLASS CO LTD
Classification:
- International: *H05B33/02; H05B33/10; H05B33/12; H05B33/14; H05B33/26; H05B33/02; H05B33/10; H05B33/12; H05B33/14; H05B33/26; (IPC1-7): H05B33/26; H05B33/02; H05B33/10; H05B33/12; H05B33/14*
- european:
Application number: JP20020049742 20020226
Priority number(s): JP20020049742 20020226

Report a data error here

Abstract of JP2003249381

PROBLEM TO BE SOLVED: To offer simple construction achieving high output efficiency and bright display.

SOLUTION: The organic electroluminescence element comprises a number of protruded portions 10B provided on a transparent substrate 1 using a colorless transparent resin layer 2. The protruded portion 10B satisfies $L=2$ to $100\text{ }\mu\text{m}$, $L/H=2$ to 20 , where L is the diameter of the protruded portion 10B in the surface direction of the substrate and H is the height in the direction of its thickness. An alkali barrier film 3, a transparent conductive film 4, a luminous layer 5 and a light deflective electrode 6 are laminated in sequence thereon. An observer 20 can view that a number of recessed portions 10A are formed. COPYRIGHT: (C)2003,JPO



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-249381

(P2003-249381A)

(43) 公開日 平成15年9月5日 (2003.9.5)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テームト* (参考)
H 0 5 B	33/26	H 0 5 B	33/26
	33/02		33/02
	33/10		33/10
	33/12		33/12
	33/14		33/14
			E
			A
		審査請求 未請求 請求項の数 7	O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願2002-49742(P2002-49742)

(22) 出願日 平成14年2月26日 (2002.2.26)

(71) 出願人 000000044

旭硝子株式会社

東京都千代田区有楽町一丁目12番1号

(72) 発明者 増茂 邦雄

神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地

旭硝子株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB06 AB17

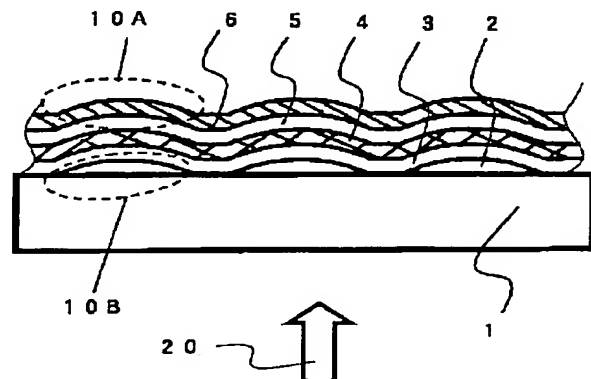
AB18 BB06 CC01 DB03 FA01

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子とその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 簡素な構造で、高い取出し効率と明るい表示を得る。

【解決手段】 透明基板1の上に、無色透明樹脂層2を用いて多数の凸部10Bが設けられ、凸部10Bの基板の面方向における径をL、厚み方向における高さをHとすると、 $L=2\sim100\mu\text{m}$ 、 $L/H=2\sim20$ を満足し、その上にアルカリバリア膜3、透明導電膜4、発光層5、光反射性電極6が順次積層され、観察者20から見て多数の凹部10Aが多数形成されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 ほぼ平面状の透明基板を備え、その透明基板の基板上に発光層と光反射性電極とが設けられ、観察者側から見て光反射性電極に多数の凹部が設けられ、基板面にほぼ平行な面内における凹部の径を L 、基板の厚み方向における凹部の高さを H とすると、 $L=5\sim 100\mu m$ 、 $L/H=2\sim 20$ を満足する有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 凹部にほぼ一対一に対応して凸部が基板面に配置されてなる請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 凸部が無色透明材料で形成されてなる請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子。

【請求項4】 凸部の構成材料の少なくとも一部に着色材料または蛍光変換材料が用いられてなる請求項2に記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子。

【請求項5】 透明基板の面内で凹部の平面部に対する占有率が20～80％である請求項1、2、3または4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】 凹部の基板面方向における断面が、円形、三角形、四角形、六角形または八角形のいずれかから選択されてなる請求項1、2、3、4または5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】 ほぼ平面状の透明基板の基板上に発光層と光反射性電極とを形成する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、基板面に多数の凸部を形成し、凸部の上に発光層と光反射性電極とを形成し、凸部にほぼ一対一に対応して光反射性電極に多数の凹部を形成し、基板面にほぼ平行な面内における凹部の径を L 、基板の厚み方向における凹部の高さを H とすると、 $L=5\sim 100\mu m$ 、 $L/H=2\sim 20$ を満足することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、自発光型の有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子ともいう。）に関する。

【0002】

【従来の技術】 Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987) には、発光層として有機材料を採用し、正孔輸送層と発光層兼電子輸送層を積層した2層構造を設け、発光層兼電子輸送層にトリス（8-キノリノラト）アルミニウム（以下、Alqと呼ぶ。）を使用した有機EL素子が開示されている。

【0003】 この有機EL素子は10V以下の駆動電圧で緑色の発光を生じ、輝度が1000cd/m²、発光効率が1.5ルーメン/Wである。

【0004】 現在広く使用されている、液晶表示装置やPDP、LED表示素子、蛍光表示装置等に対し、有機

EL素子は原理上、明るい表示を提供でき、かつ、高精度で、視認性がすぐれており、高い情報品位の表示を行なうことのできる次世代の表示素子として期待されている。

【0005】 そのため、有機EL素子を実用化するにあたり、明るく低消費電力であることが強く求められている。その特性を実現するには、有機EL素子の発光材料や電極の良好な組み合わせを選択し、発光効率自体を向上することが必要である。さらに、自発発光した光の取出し効率を向上することも重要となる。

【0006】 一般的有機EL素子の場合、単純な平面構造の発光層から等方的に発せられた発光のうち、およそ80％は基板界面で反射され、さらに、基板端面から外部に放出されるか、または有機EL素子の構成物質に吸収される。その結果、有機EL素子の前面に放出され、観察者が視認できる光 L_o は20％程度であると算定されている（図4参照）。

【0007】 現状の有機EL素子では、自発発光する光の大半が失われ、表示に寄与する割合が相当低いのである。そこで、有機EL素子の光取出し効率を向上するために、有機EL素子の基板に光学素子を組み込む方法が知られている。たとえば、特開平10-172756号公報には、透明基板自体に平板マイクロレンズを組み込む手法が示されている。

【0008】 また、OPTICS LETTERS Vol. 22, No. 6, 396 (1997) には、表面をメサ型に加工したガラス基板の上面に、有機EL素子を形成した試作例が発表されている。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】 このように、従来例において、自発発光する光の取り出し効率を向上させる試みが行なわれている。しかし、取出し効率を向上させるための素子構造および製造工程が複雑であり、大面積の基板に適用できないという問題がある。

【0010】 また、有機EL素子の製造コストが基本的に高価になり、量産に適さないという問題点がある。

【0011】

【課題を解決するための手段】 すなわち、本発明の態様1は、ほぼ平面状の透明基板を備え、その透明基板の基板上に発光層と光反射性電極とが設けられ、観察者側から見て光反射性電極に多数の凹部が設けられ、基板面にほぼ平行な面内における凹部の径を L 、基板の厚み方向における凹部の高さを H とすると、 $L=5\sim 100\mu m$ 、 $L/H=2\sim 20$ を満足する有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【0012】 態様2は、凹部にほぼ一対一に対応するように凸部が基板面に設けられてなる態様1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【0013】 態様3は、凸部が無色透明材料で形成されてなる態様2に記載の有機エレクトロルミネッセンス表

示素子を提供する。

【0014】態様4は、凸部の構成材料の少なくとも一部に着色材料または蛍光変換材料が用いられてなる態様2に記載の有機エレクトロルミネッセンス表示素子を提供する。

【0015】態様5は、透明基板の面内で凹部の平面部に対する占有率が20～80%である態様1、2、3または4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【0016】態様6は、凹部の基板面方向における断面が、円形、三角形、四角形、六角形また八角形のいずれかから選択されてなる態様1、2、3、4または5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【0017】態様7は、ほぼ平面状の透明基板の基板上に発光層と光反射性電極とを形成する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、基板面に多数の凸部を形成し、凸部の上に発光層と光反射性電極とを形成し、凸部にほぼ一対一に対応して光反射性電極に多数の凹部を形成し、基板面にほぼ平行な面内における凹部の径をL、基板の厚み方向における凹部の高さをHとすると、 $L=5\sim 100\mu\text{m}$ 、 $L/H=2\sim 20$ を満足することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法を提供する。

【0018】また、上記の有機エレクトロルミネッセンス素子において、凹部または凸部が面内で、 $10^4\sim 10^6$ 個/ cm^2 形成されてなることが好ましい。

【0019】

【発明の実施の形態】本発明の基本構成は、透明基板上の光反射性電極6に多数の凹部10Aが設けられる（図1参照）。観察者20から見て反対側に光反射性電極6が配置される。すなわち非観察者側に位置する光反射性電極6に凹部10Aの集合体が多数形成される。

【0020】この凹部10Aは、あらかじめ基板1に、無色透明樹脂からなる凸部10Bを多数形成し、その上に、アルカリバリヤ層3、透明電極4、発光層5、光反射性電極6をならって成膜することで形成できる。または、形状を転写するようにして順に各層を形成していけばよい。

【0021】図2に、基板1の上の面内に多数の凸部が集合して形成された凸面部10を示す。簡素な構造を採用する場合には、図2に示すように、無色透明樹脂からなる凸部を必要となる表示面の大きさに対応して準備し、その上に透明導電膜、発光層を含む有機層、光反射性を有する電極が順に積層され、観察者20側から見て凹部10Aを有する光反射性電極6が備えられた有機EL素子が形成される。

【0022】発光層、光反射性電極は基板面にあらかじめ設けられた凸部にならって形成することが容易であり好ましい。この場合には、発光層、光反射性電極はほぼ同様の曲面形状を有することになる。

【0023】そして、基板1上の凸部との間に発光層を挟持するように位置する光反射性電極6の凹部10Aが実質的に凹面鏡として機能する（図5参照）。発光層5で自発発光せしめられた光が非観察者側に位置する光反射性電極6の凹部10Aで反射され、基板1を通過する光L0の確率を高めることができる。

【0024】このようにして、有機EL素子からの光が前方へ積極的に放出されるように構成し、有機EL素子全体における光の取出し効率を高めることができる。つまり、観察者が視認して表示に寄与できる光L0を飛躍的に増加せしめることができる。次に本発明の作用を説明する。

【0025】まず、ガラス基板の表面が平面の場合を想定する。ガラスの屈折率を1.5、透明電極・有機層の屈折率を1.8とする。ガラス／空気界面の全反射の臨界角は 41.8° となる。

【0026】この臨界角に対応する透明電極／ガラス界面への光の入射角は 33.7° となる。発光層から全方向に出射された光のうち、非観察者側に位置する陰極（反射性の電極）の方向に向けて出射した光が陰極によって100%反射されたとしても、この角度条件を満足する光の存在確率は約17%に過ぎない。

【0027】次に本発明において、光反射性電極に凹部の構造を設けることによって、光取出し効率を向上できることについて説明する。凹部の中央部の近傍から出射する光について試算を行なった。または、観察者20から見て、凸部10Bの頭頂部に自発発光の中心があると想定したものである。

【0028】図8に、 $H=L/2$ の場合を示す。基板の材料はガラスであるとする。同図において、 $\theta=0\sim 33.7^\circ$ の範囲の出射角に入る光線はガラス基板の表面から外部に出射される。しかし、 $\theta=33.7^\circ$ より大きく、 $\phi=45^\circ$ の範囲の出射光は、ガラス／空気界面で全反射され、ガラス基板内を横に伝播し、表示面側には出射されない。

【0029】よって、表示に寄与できない無効な光となる。 $\theta=45^\circ$ よりも角度が大きい出射光は、凹面鏡として機能する電極によって反射される。そして、ガラス基板の表面に対して深い角度でガラス基板の内部に進入するため、表示にもつぱら寄与できる光として、外部に有効に取出される。

【0030】 $\theta=33.7^\circ$ より大きく $\phi=45^\circ$ の範囲の出射光（斜線部分のTL）が主に無効な光となる。全放射方向のうち、この角度範囲（およびその 180° 反対方向における角度範囲）に入る確率は、約12%である。したがって、この場合、この凹部における光取出し効率は88%となる。

【0031】図9に、凹部の形状を浅く設け、アスペクト比 $L/H=10$ に設定した例を示す。上記と同様の計算手法によって、凹部の中央部近傍からの出射光につい

ては、 $\theta = 33.7^\circ$ から $\phi = 78.7^\circ$ の範囲の出射光が無効となり、光取出し効率は 37% となる。

【0032】凹部の側壁部から出射する光のすべてについて、高精度で試算することは難しいが、凹部の高さが高いほど、ガラス基板の表面に対して「深い角度」で出射される光の割合が増えると推定できる（図 8、図 9 参照）。

【0033】したがって、上述したように、凹部の中央部から出射する光を主として近似試算を行なえばよい。この手法によって、有機 EL 素子の全体的な表示光の出射状態または有効使用率を知ることができる。

【0034】画素の中で、凹部の占める割合を変化させたときの、一つの画素における光取出し効率の計算値を下記の表 1 に示す。たとえば、直径 10 μm の凹部を 2

凹部の形状と配置	凹部の占有率	アスペクト比 = L/H				平面 $H=0$
		2	5	10	20	
凹部のみの場合	100%	88%	54%	37%	27%	17%
L: 10 μm 配置: 15 μm ピッチ	79%	73%	46%	33%	25%	
L: 15 μm 配置: 20 μm ピッチ	44%	48%	33%	26%	21%	
L: 10 μm 配置: 20 μm ピッチ	20%	31%	24%	21%	19%	

【0037】なお、ガラス基板の場合について説明したが、本発明はプラスチック基板のように、柔軟性を有し曲面状に変化し得る材料の場合にも適用できる。ガラスの場合よりも、屈折率の相対的な関係から本発明を用いることがより好ましい。

【0038】また、多数の凸部が備えられた凸面部の全体を無色透明材料で形成することが好ましい。たとえば、透明基板上に透明樹脂で凸部のパターンを樹脂成型によって形成できる。また、シリカビーズのような透明球体を透明膜に埋め込んで形成してもよい。また、透明基板自体をプレス成型し、有機 EL 素子の形成面に凸面

部を形成してもよい。

【0039】凸部の大きさは、光の干渉による色、強度の変化の影響が小さくなるように、有機 EL 素子の発光波長よりも充分大きな径であるように構成する。かつ、有機 EL 素子の一つの画素の大きさより充分小さな径であるように構成する。

【0040】本発明では、光反射性電極の凹部の平面方向における径 L を 5~100 μm の範囲とすることが好ましい。また、凹部の形状が半球に近いほど、光り取出し効率が高くなる。しかし、上記のような凸部を形成し、その上に凹部をならって形成する製造方法を採用した場合、基板の平面方向に多数の凸部を連続的に設けることが必要となり、その際に、凸面部の全体を均一に整えて形成することが難しくなる。

【0041】したがって、凸部の寸法として、径 L に対

0 μm ピッチで配置したときに、透明基板の表面内で凹部の占める断面積の相対比率(占有率)は 20% となる。

表 1 の右欄に、凹部を設けずに完全な平面構成をとる従来例の場合を示す。凹部は平面内で XY 方向ともにほぼ等ピッチで配置するようにした。

【0035】このとき、凹部の高さを 2 μm 、 $L = 10 \mu\text{m}$ ($H = L/5$) とすれば、一つの画素における光取出し効率は 24% と試算される。ガラス基板の表面に凸部を設けずに、平面のみである比較例に対して、光の取り出し効率が約 40% 向上する。これは後述する実施例の結果とほぼ一致する。

【0036】

【表 1】

する高さ H のアスペクト比 $= H/L$ を、2~20 となるように設ける。また、 $H/L = 3 \sim 10$ となることがさらに好ましい。径 L とは、平面方向においてほぼ径として機能する寸法である、正確な円形、三角形、四角形等の形状を有していなくてもよい。

【0042】一般的には、画素を構成するために、同じサイズの凸部を平面内に均一に並べて、凸部の集合体を形成するように設計する。図 6 に略六角形の平面形状の例を、図 7 に略八角形の平面形状の例を示す。

【0043】凸部の上に発光層を覆い、さらに凹面鏡として作用するような凹部を有する光反射性電極の曲面体を構成する。横方向に光を逃がさず、観察者側に光を集光するように、実質的に凹面鏡として機能するような形状に構成すればよい。

【0044】さらに、凸部の一部をカラーフィルタ材料のような着色材料や、蛍光変換材料のような波長変換材料、つまり有色透明体で形成してもよい。この態様においては、有機 EL 素子の自発発光の光の色度の調整を合わせて行なうことができる。つまり、自発発光の集光機能と色度調整機能を同時に達成できる。図 3 にカラーフィルタ材料を用いて形成した着色層 7、オーバーコート層 8 とが備えられた態様の有機 EL 素子の模式的断面図を示す。

【0045】この態様の有機 EL 素子を形成するには、カラーフィルタ材料や蛍光変換材料のパターンをオーバーコート膜で覆うことにより、凸部の形成を行なえばよ

い。以下、本発明の具体的な態様を例1~3をあげて説明する。本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0046】

【実施例】(例1) 図1を参照し本例の説明を行なう。ガラス基板1の上に無色透明樹脂2の層を用いて凸部10Bを形成した。ガラス基板1の上にクリアレジスト(東京応化工業製CFPR)を塗布し、フォトリソグラフィにより直径10 μ mの円形パターンを20 μ mピッチで敷き詰めるように形成した。この円形パターンは最終的に形成しようとする有機EL素子の画素の大きさよりも充分小さくなるように構成した。

【0047】膜厚は円形パターンの中心部で2 μ m、円形パターンの外周部に向かってなだらかに膜厚が減少していく曲面形状になるように形成した。さらに、その円形パターンの集合体である凸面部の上にスパッタリングにより、アルカリバリア膜3としてSiO₂膜(膜厚20nm)、透明電極膜4としてITO膜(膜厚200nm)を連続して成膜し、さらにITO膜をパターンニングして陽極を形成した。

【0048】この陽極上に、真空蒸着法により、銅フタロシアニン(膜厚10nm)、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ピフェニル(以下、 α -NPDと呼ぶ。)を成膜し(膜厚40nm)、さらにAlq(膜厚50nm)、LiF(膜厚0.5nm)をそれぞれ成膜し発光層5とした。最後に陰極となる金属膜として100nmのAlを蒸着して有機EL素子を形成した。このようにして、凸部10Bとほぼ同様の形状、配置ピッチを有する凹部10Aを有する光反射性電極6を形成できた。

【0049】本例の有機EL素子を発光させ、発光面を顕微鏡で観察すると、直径10 μ mの円形パターンが明るく発光している様子が見られた。発光部が完全な平面状であること以外は、同様にして形成した比較例の有機EL素子と、電圧-輝度特性を対比したところ、本例は50~60%輝度が向上していることが確認された。

【0050】(例2) 図2、図3を参照し本例の説明を行なう。ガラス基板上に赤色のカラーレジスト層7(新日鐵化学社製V259)を塗布し、フォトリソグラフィにより直径10 μ mの円形パターンを20 μ mピッチで平面上に敷き詰めるように形成した。

【0051】基板上に形成した円形パターンの膜厚を2.5 μ mとした。その上にオーバーコート膜8としてクリアレジスト(東京応化工業製CFPR)を塗布した。すると、多数の凸部を有するカラーレジストパターンの段差がある程度平坦化され、なだらかな表面形状となった。

【0052】さらにこの上にスパッタリングによりアルカリバリア膜3として、20nmのSiO₂膜、透明電極膜4として膜厚200nmのITO膜を連続して成膜

し、そして、ITO膜をパターンニングして陽極を形成した。

【0053】この陽極上に、真空蒸着法により、銅フタロシアニンを膜厚10nmに成膜し、 α -NPDを膜厚40nmに成膜し、さらにルブレン2%ドープAlq(膜厚30nm)、Alq(膜厚30nm)、LiF(膜厚0.5nm)を成膜し発光層5とした。

【0054】最後に陰極となる光反射性電極6として100nmの膜厚にAlを蒸着して有機EL素子を形成した。本例の凹部20Aも、例1と同様に、あらかじめ形成した凸部10Bと実質的に一対一に対応するものであった。

【0055】本例の有機EL素子に所定の電流を供給して発光させた。その発光面を顕微鏡で観察すると、直径10 μ mの円形パターンが赤く発光しており、その周辺の平面部分は黄色く発光している様子が見られた。肉眼では発光色はオレンジ色に見えた。

【0056】(例3) 例1と同様に、図6に示すような一つのパターンが略六角形であるパターンを有する有機EL素子を形成した。L=10 μ m、H=1 μ m(アスペクト比L/H=10)に設定した。すると、本例の有機EL素子の前方への光の出射率が約70%向上した。

【0057】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、比較的簡単な構成で、前方への光の放出の割合を増し、光取出し効率の高い有機EL素子を得ることができる。光取出し効率が高いことによって、同じ電力消費ならば、より明るい表示装置を形成できる。また、同じ明るさを表示するのであるならば、低消費電力の表示装置を実現できる。

【0058】また、本発明の有機EL素子は、従来例と比べて、有機EL素子の形成される基板上における表面積が、画素面積より若干大きくなる。表示に寄与する発光層が単位面積あたりで増加して形成されているので、従来例の平面形状の有機EL素子に比べて基本的に明るさが増大する。そして、有機EL素子の駆動電圧を低電圧化できる。大面積の表示装置に容易に適用できる。

【0059】さらに、本発明の有機EL素子は、金属電極が平面でないために、鏡面にならず、発光していないときの画素を見たときの映り込みが生じにくいという効果もある。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機EL素子の第1構成例における模式的断面図。

【図2】本発明の有機EL素子の第1構成例における模式的平面図。

【図3】凸部を着色材料や蛍光変換材料を用いて形成した例の断面図。

【図4】従来例の有機EL素子における模式的光路図。

【図5】本発明の有機EL素子の模式的光路図。

【図6】本発明の有機EL素子の第2構成例における模式的平面図。

【図7】本発明の有機EL素子の第3構成例における模式的平面図。

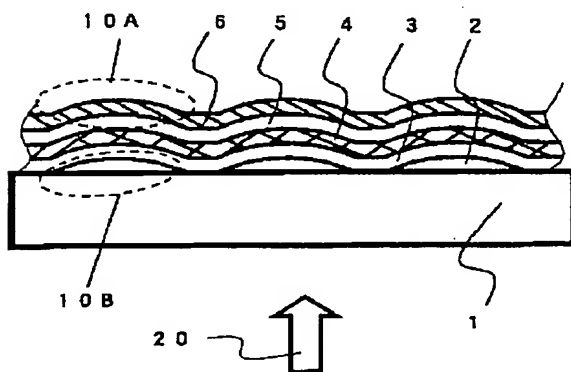
【図8】本発明における凹部近傍の光路図。

【図9】本発明における凹部近傍の光路図。

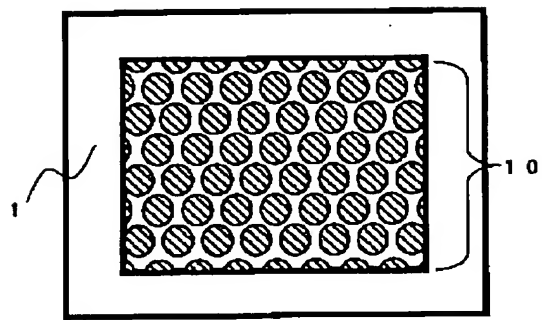
【符号の説明】

- 1：基板
- 2：無色透明樹脂
- 3：アルカリバリア膜
- 4：透明電極
- 5：発光層
- 6：光反射性電極（金属電極）
- 7：着色材料または蛍光変換材料
- 8：オーバーコート膜

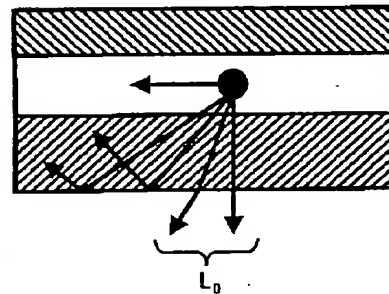
【図1】



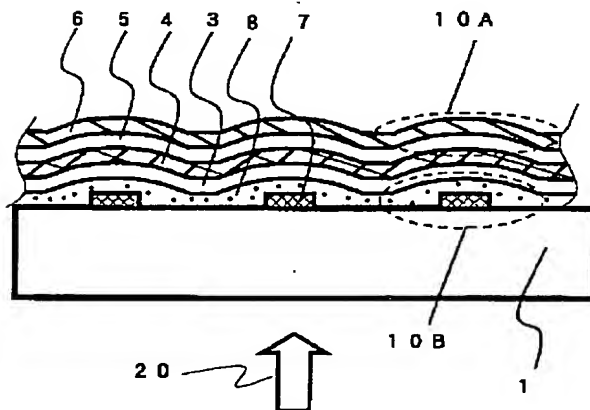
【図2】



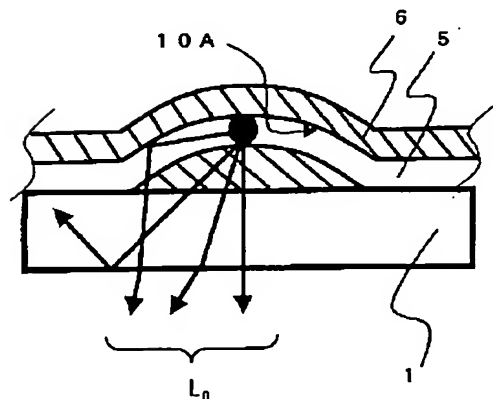
【図4】



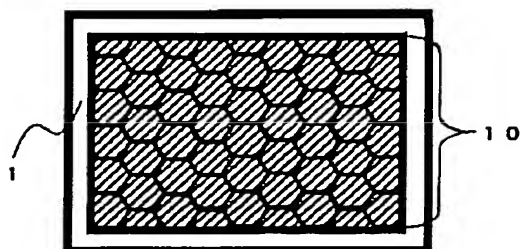
【図3】



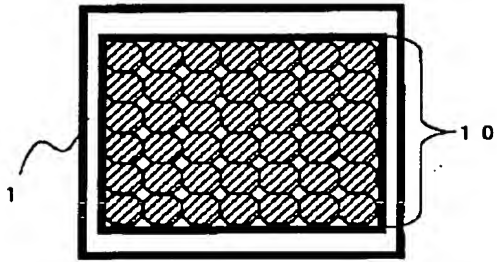
【図5】



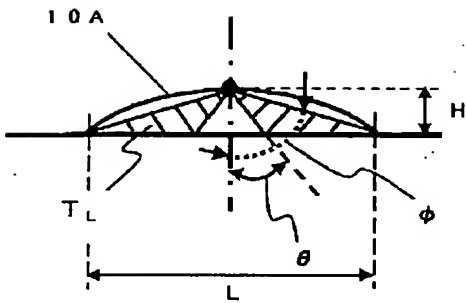
【図6】



【図 7】



【図 9】



【図 8】

